

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

18.10.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日      2 0 0 4 年   2 月   6 日  
Date of Application:

出 願 番 号      特 願 2 0 0 4 - 0 3 0 1 1 2  
Application Number:  
[ST. 10/C]:      [ J P 2 0 0 4 - 0 3 0 1 1 2 ]

出      願      人  
Applicant(s):      原子燃料工業株式会社

REC'D 09 DEC 2004

WIPO

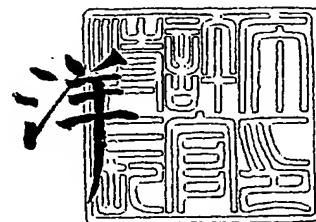
PCT

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年 1 1 月 2 6 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



BEST AVAILABLE COPY

出証番号   出証特 2 0 0 4 - 3 1 0 7 4 1 3

【書類名】 特許願  
【整理番号】 G030901  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 G21C 3/58  
【発明者】  
    【住所又は居所】 茨城県那珂郡東海村村松 3 1 3 5 - 4 1 原子燃料工業株式会社  
                    東海事業所内  
    【氏名】 本田 真樹  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000165697  
    【氏名又は名称】 原子燃料工業株式会社  
【代理人】  
    【識別番号】 100087594  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 福村 直樹  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 012069  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1  
    【包括委任状番号】 9807699

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

アンモニア水溶液を貯留する沈殿槽と、  
前記沈殿槽に貯留されたアンモニア水溶液に、硝酸ウラニル含有原液を滴下する複数の  
滴下ノズルと、

前記複数の滴下ノズルそれぞれから滴下される硝酸ウラニル含有原液の液滴が落下する  
落下行路それぞれに向けてアンモニアガスを噴出可能なアンモニアガス噴出手段とを備え  
て成ることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。

**【請求項 2】**

前記アンモニアガス噴出手段から噴出されたアンモニアガスを吸引するアンモニアガス  
吸引手段を備えて成り、

前記アンモニアガス吸引手段は、前記液滴の落下行路を中にして前記アンモニアガス噴  
出手段とは反対側の位置に設けられることを特徴とする前記請求項 1 記載の重ウラン酸ア  
ンモニウム粒子製造装置。

**【請求項 3】**

前記アンモニアガス噴出手段は、前記液滴の落下行路に向けてアンモニアガスを噴出可  
能な複数のアンモニアガス噴出口を有し、前記複数のアンモニアガス噴出口から噴出する  
アンモニアガスの流量を調節可能であることを特徴とする前記請求項 1 または請求項 2 記  
載の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。

## 【書類名】明細書

## 【発明の名称】重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置

## 【技術分野】

## 【0001】

この発明は、重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

高温ガス炉用燃料は、一般的に以下のような工程を経て製造される。まず、酸化ウランの粉末を硝酸に溶かし硝酸ウラニル原液とする。次に、この硝酸ウラニル原液に純水および増粘剤等を添加し、攪拌して滴下原液とする。調製された滴下原液は、所定の温度に冷却され、粘度を調製した後、細径の滴下ノズルを用いてアンモニア水溶液に滴下される。

## 【0003】

このアンモニア水溶液に滴下された液滴は、アンモニア水溶液の表面に達するまでの間に、アンモニアガスが吹きかけられる。このアンモニアガスによって、液滴表面がゲル化され、これにより、落下する前記液滴がアンモニア水溶液の表面に衝突する際に、ゲル化した液滴の変形が、防止される。なお、ゲル化した液滴を、以下において「ゲル化液滴」と称することがある。アンモニア水溶液中におけるゲル化液滴は、その内部に存在する硝酸ウラニルがアンモニアと反応することにより、重ウラン酸アンモニウム粒子（以下において、「ADU粒子」と略することがある。）となる。

## 【0004】

このADU粒子は、乾燥された後、大気中で焙焼され、三酸化ウラン粒子となる。さらに、三酸化ウラン粒子は、還元および焼結されることにより、高密度の二酸化ウラン粒子となる。この二酸化ウラン粒子をふるい分け、すなわち分級して、所定の粒子径を有する燃料核微粒子を得る。

## 【0005】

この燃料核微粒子を流動床に装荷し、被覆層を形成するためのガスを熱分解して、燃料核微粒子表面に複数層から成る被覆層を形成する。被覆層における第一層は、約1400℃でアセチレンを熱分解することにより生成する低密度熱分解炭素で、形成される。また、被覆層における第二層、及び第四層は、約1400℃でプロピレンを熱分解することにより生成する高密度熱分解炭素で、形成される。さらに、被覆層における第三層は、約1600℃でメチルトリクロロシランを熱分解することにより、形成される。

## 【0006】

被覆層が形成された後、高温ガス炉用燃料は、一般的な燃料コンパクトとして成型される。この燃料コンパクトは、高温ガス炉用燃料を黒鉛粉末、粘結剤等からなる黒鉛マトリックス材とともに、中空円筒形等にプレス成型またはモールド成型したのち、焼成して得られる（非特許文献1参照）。

## 【0007】

【非特許文献1】原子炉材料ハンドブック、p221-p247、昭和52年10月31日発行、日刊工業新聞社発行

## 【0008】

従来は、複数の滴下ノズルに対して、アンモニアガスを噴出する噴出口が一つである設備を使用していた。このようにアンモニアガスを噴出する噴出口が一つである設備を使用すると、複数の滴下ノズルから各々滴下された液滴に対するアンモニアガスの流速が均等とはならず、各液滴ごとに接触するアンモニアガスの流速が相違する。そのため、生成される重ウラン酸アンモニウム粒子の表面に、例えば、波紋状の模様を呈する等の不都合が生じ、後の工程で得られる二酸化ウラン粒子の真球性に影響を与えるという問題点がある。

## 【発明の開示】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0009】

この発明は、このような従来の問題点を解消し、真球性の良い二酸化ウラン粒子を得るための重ウラン酸アンモニウム粒子を製造することのできる重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0010】

前記課題を解決するための手段は、アンモニア水溶液を貯留する沈殿槽と、前記沈殿槽に貯留されたアンモニア水溶液に、硝酸ウラニル含有原液を滴下する複数の滴下ノズルと、前記複数の滴下ノズルそれぞれから滴下される硝酸ウラニル含有原液の液滴が落下する落下行路それぞれに向けてアンモニアガスを噴出可能なアンモニアガス噴出手段とを備えて成ることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置である。

【0011】

この発明に係る重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の好適な態様において、前記アンモニアガス噴出手段から噴出されたアンモニアガスを吸引するアンモニアガス吸引手段を備えて成り、前記アンモニアガス吸引手段は、前記液滴の落下行路を中にして前記アンモニアガス噴出手段とは反対側の位置に設けられる。

【0012】

この発明に係る重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の好適な態様において、前記アンモニアガス噴出手段は、前記液滴の落下行路に向けてアンモニアガスを噴出可能な複数のアンモニアガス噴出口を有し、前記複数のアンモニアガス噴出口から噴出するアンモニアガスの流量を調節可能である。

【発明の効果】

【0013】

(1) この発明によれば、複数の滴下ノズルから各々滴下される硝酸ウラニル含有原液の一連の液滴に、アンモニアガス噴出手段からアンモニアガスを噴出するから、滴下ノズル毎に落下する液滴に均一にアンモニアガスを噴出することになり、しかも、生成するADU粒子が波紋状の模様を呈することもないため、真球性の良い二酸化ウラン粒子を得ることができる。

【0014】

(2) この発明によれば、アンモニアガス吸引手段が噴出されたアンモニアガスを吸引することで、噴出されたアンモニアガスのガス流の指向性が高まり、複数のアンモニアガスのガス流が互いに影響を与えることが少なくなるので、より一層生成するADU粒子が波紋状の模様を呈することがなくなる。

【0015】

(3) この発明によれば、前記複数のアンモニアガス噴出口は、アンモニアガスの噴出流量を各々調節可能であることにより、アンモニアガスの圧力損失が異なる場合でも、アンモニアガスの噴出状態を一定に保つことができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0016】

以下、図1を参照しながらこの発明の一実施形態に係る重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置（以下、「ADU粒子製造装置」と称することがある。）について説明する。ただし、図1に記載されたADU粒子製造装置は、この発明の一例であり、この発明に係るADU粒子製造装置は、図1に記載されたADU粒子製造装置に限られることはない。

【0017】

〔ADU粒子製造装置〕

前記ADU粒子製造装置1は、図1に示されるように、沈殿槽2と、沈殿槽2の上方に設けられた複数の滴下ノズル3と、沈殿槽2および滴下ノズル3の間に設けられた複数のアンモニアガス噴出手段4および複数のアンモニアガス吸引手段5とを備えて成る。

【0018】

〔沈殿槽〕

沈殿槽2は、アンモニア水溶液を貯留し、滴下ノズル3から落下してくる液滴中の硝酸

ウラニルとアンモニアとを反応させて重ウラン酸アンモニウム粒子を形成する槽である。この沈殿槽2は、上部が開口し、下部が閉塞している円筒形状を有している。なお、沈殿槽2の下部には、図示は略すが、生成した重ウラン酸アンモニウム粒子（以下、「ADU粒子」と略す場合がある。）を排出する排出口が設けられている。この排出口には、また、沈殿槽2内のアンモニア水溶液にアンモニアガスを噴出させてアンモニア水溶液に上下の循環流を形成させることのできる循環流形成手段が設けられる。

#### 【0019】

また、沈殿槽2の外部には、沈殿槽2内にアンモニアガスを充満させるアンモニアガス供給手段21が設けられている。このアンモニアガス供給手段21は、沈殿槽2の側面壁に形成されたアンモニアガス供給口22に接続され、沈殿槽2内であってアンモニア水溶液の液面上にアンモニアガスを充満させる。アンモニアガス供給口22は、貯留するアンモニア水溶液の液面より高い位置に形成されている。

#### 【0020】

##### [滴下ノズル]

滴下ノズル3は、前記沈殿槽2に貯留されたアンモニア水溶液に、硝酸ウラニル含有原液（以下、「滴下原液」と略する場合がある。）を滴下するとともに、一列に一定間隔に配列されて複数設けられている。なお、この複数の滴下ノズル3は、所定の内径を有しているものであればよく、滴下原液を滴下する際には、図示は略すが、各々の滴下ノズルを滴下原液の滴下方向および／または滴下方向に対する直交方向に振動させることにより、滴下原液を滴下させるようになっている。なお、この滴下ノズル3は、配管を介して、滴下原液を貯留する滴下原液貯留槽（図示せず。）に結合されて、この滴下原液貯留槽から滴下原液が供給されるようになっている。また、図1に示される例では、複数の滴下ノズル3が水平方向に一列に配列されているが、この発明においては、水平な複数列となって滴下ノズルが配設されていても、また、円陣列となって滴下ノズルが配設されていてもよい。

#### 【0021】

##### [アンモニアガス噴出手段]

アンモニアガス噴出手段4は、沈殿槽2の開口部の上方で、かつこの開口部を閉塞しない位置に設けられている。このアンモニアガス噴出手段4は、詳しくは、図2に示されるように、前記複数の滴下ノズル3から各々滴下される滴下原液の液滴に、前記液滴が落下する落下行路Xに向けて各々アンモニアガスを噴出可能であればよく、液滴の各々の滴下行路X上に各々アンモニアガスを噴出可能な複数の円形状のアンモニアガス噴出口41を有している。つまり、複数の滴下ノズル3それぞれにより形成される滴下粒子の落下行路X毎にアンモニアガス噴出口41が配設される。なお、アンモニアガスは、アンモニアガス供給手段21より、アンモニアガス噴出手段4へ供給されている。

#### 【0022】

このアンモニアガス噴出口41から噴出されるアンモニアガスの噴出方向と滴下行路Xとは、直交することが好ましい。このようにすれば、各液滴の表面に均等にアンモニアガスを吹きかけることができる。

#### 【0023】

図2に示されるような具体的な態様においては、一例として、前記複数のアンモニアガス噴出口41の内径D1は、1～17mmである。ここで、内径D1が、1mm未満であると、液滴の一部分にしかアンモニアガスを吹き付けることができない場合がある。内径D1が、17mmを超えると、各々隣接する液滴に同時にアンモニアガスを吹き付けてしまい、結果として、液滴に対するアンモニアガスの吹き付けが不均一となる場合がある。

#### 【0024】

また、図2に示されるような具体的な態様においては、一例として、滴下ノズル3の先端から前記アンモニアガス噴出口41の上端までの高さH1は、10～40mmである。ここで、高さH1が、10mm未満であると、液滴に対するアンモニアガスの吹き付けの時間が短すぎて、液滴に対するアンモニアガスの吹き付けが不十分となる場合がある。

さH1が、40mmを超えると、液滴に対するアンモニアガスの吹き付けの時間が長くなり、アンモニアガスの吹き付けが過剰となる場合がある。

#### 【0025】

さらに、図2に示されるような具体的な態様においては、一例として、前記滴下行路Xと前記アンモニアガス噴出口41先端との距離L1が、3～15mmである。ここで、距離L1が、3mm未満であると、アンモニアガス噴出口41自体に液滴の付着が発生してしまう場合がある。距離L1が、15mmを超えると、噴出されるアンモニアガスが周囲の空気を含んでしまい、液滴に吹きかけるに十分なアンモニアガス濃度を確保できない場合がある。

#### 【0026】

また、この複数のアンモニアガス噴出口41は、アンモニアガスの噴出流量を各々調節可能である。詳しくは、図3に示されるように、アンモニアガス噴出口41の各々にアンモニアガスを供給する配管42に流量計43を接続し、この配管42に接続されるバルブ44を操作し、流量計43を観察することでアンモニアガスの噴出流量を各々調節する。

#### 【0027】

なお、前記内径D1、高さH1及び距離L1が前記範囲である場合に、アンモニアガス噴出口41からアンモニアガスを噴出する際の流量計43での流量が、3～25L/minであることが好ましい。アンモニアガスを噴出する際の流量が、3L/min未満であると、重ウラン酸アンモニウムを含有する被膜の形成が貧弱な液滴が形成される可能性があり、アンモニアガスを噴出する際の流量が、25L/minを超えると、アンモニアガスの気流により液滴の自由落下が阻害される可能性がある。

#### 【0028】

##### [アンモニアガス吸引手段]

アンモニアガス吸引手段5は、沈殿槽2の開口部の上方で、かつこの開口部を閉塞しない位置に設けられる。アンモニアガス吸引手段5は、さらに詳しくは、図2に示されるように、アンモニアガス噴出手段4とは前記滴下行路Xに対して反対側の位置に設けられ、噴出されたアンモニアガスを吸引する。

#### 【0029】

なお、前記滴下行路Xと前記アンモニアガス吸引手段5の先端との距離L2は、液滴とアンモニアガス吸引手段5が干渉しない程度の距離であればよい。

#### 【0030】

このようにアンモニアガス吸引手段5が配置されていると、アンモニアガス噴出手段4から噴出するアンモニアガス流を滞留させることがなく、アンモニアガス噴出手段4からアンモニアガス吸引手段5迄を円滑に流れるアンモニアガス気流を形成することができる。

。

#### 【0031】

このアンモニアガス吸引手段5は、落下する液滴の落下行程Xを横切るアンモニアガスの気流に乱流を生じさせず、アンモニアガスの円滑な気流を形成することができるよう形成されていけばよい。

#### 【0032】

したがって、図2に示される態様においては、アンモニアガス吸引手段5は、アンモニアガス噴出口41に向かい合って開口するアンモニアガス吸引口（図示せず。）を、アンモニアガス噴出口41毎に配設している。

#### 【0033】

このようなアンモニアガス吸引手段5であると、アンモニアガス噴出口41とこれに向かい合うアンモニアガス吸引口との間に、アンモニアガス噴出口41から噴出し、乱されることがないアンモニアガス気流が形良く形成される。そして、このように乱れることなく流れるアンモニアガス気流中を液滴が落下すると、アンモニアガス気流中を通過する液滴全体を包み込むようにアンモニアガス気流が流れるので、液滴の表面に均一な重ウラン酸アンモニウムを含有する被膜が形成されてゲル化液滴が形成されることになる。

## 【0034】

[ADU粒子製造装置の使用法および作用]

上記したADU粒子製造装置の使用法および作用を以下に述べる。まず、沈殿槽2内に所定濃度、所定量のアンモニア水溶液を貯留する。一方、アンモニアガス供給手段21を作動させ、沈殿槽2内に所定濃度及び所定量のアンモニアガスを充填させる。

## 【0035】

次に、滴下ノズル3に所定の滴下原液を流通させ、複数の滴下ノズル3より滴下原液の液滴を滴下する。滴下された各々の液滴は、滴下行路X上を落下する。一方、アンモニアガス噴出手段4のアンモニアガス噴出口41から、前記液滴が自由落下により通過する滴下行路Xそれぞれにアンモニアガスが各別に噴出される。アンモニアガス噴出口41から噴出されたアンモニアガスは、各液滴に各々均等に吹きかけられることとなり、各液滴の表面では、ゲル化が進む。

## 【0036】

そして、アンモニアガス吸引手段5において、噴出されたアンモニアガスを吸引する。このアンモニアガス吸引手段5が噴出されたアンモニアガスを吸引することで、噴出されたアンモニアガスのガス流の指向性が高まり、複数のアンモニアガスのガス流が互いに影響を与えることが少なくなる。

## 【0037】

さらに、アンモニアガスを吹きかけられた各液滴は、沈殿槽2の開口部から沈殿槽2の内部へ落下する。ここで、沈殿槽2の内部のアンモニア水溶液液面よりも上側の部分は、アンモニアガスが充満した状態である。この沈殿槽2の内部の落下の際に、各液滴が、アンモニアガスが充満した部分からアンモニアガスを吸収することとなる。このアンモニアガスの吸収により、各液滴の表面は、一層ゲル化が進む。

## 【0038】

その後、各液滴は、沈殿槽2の内のアンモニア水溶液内に沈降していき、このアンモニア水溶液より、さらにアンモニアを吸収する。そして、各液滴は、表面だけでなく、内部までもゲル化が進み、ADU粒子へと反応が進む。

## 【0039】

所定の時間後、反応が進み、沈殿槽2の下部に沈殿したADU粒子は、図示しない沈殿槽2の排出口より、沈殿槽2の外部へ排出される。

## 【0040】

なお、沈殿槽2外部へ排出されたADU粒子は、乾燥して、その後、所定の条件で焙焼、還元・焼結の各工程を経て、二酸化ウラン粒子となる。

## 【0041】

上述のような本実施形態によれば、次のような効果がある。

(1) 複数の滴下ノズル3から各々滴下される滴下原液の液滴に、アンモニアガス噴出手段4から液滴の各々の滴下行路X上に各々アンモニアガスを噴出するから、各液滴ごとに均一にアンモニアガスを噴出することになり、生成するADU粒子が波紋状の模様を呈することもなくなり、真球性の良い二酸化ウラン粒子を得ることができる。

## 【0042】

(2) アンモニアガス吸引手段5が噴出されたアンモニアガスを吸引することで、噴出されたアンモニアガスのガス流の指向性が高まり、複数のアンモニアガスのガス流が互いに影響を与えることが少なくなるので、より一層生成するADU粒子が波紋状の模様を呈することがなくなる。

## 【0043】

(3) アンモニアガス噴出口41は、アンモニアガスの噴出流量を各々調節可能であることにより、アンモニアガスの圧力損失が異なる場合でも、アンモニアガスの噴出状態を一定に保つことができる。

## 【0044】

なお、この発明は前記実施形態に限定されるものではなく、この発明の目的を達成でき



る範囲での変形、改良は、この発明に含まれるものである。

【0045】

前記実施形態においては、例えば、アンモニアガス噴出手段4は、複数の円形状のアンモニアガス噴出口41を有しているものであったが、これに限られず、図4に示されるように、液滴の各々の滴下行路X方向に長いスリット状のアンモニアガス噴出口41Aとしても良い。

【0046】

その他、この発明を実施する際の具体的な構造および形状等は、この発明の目的を達成できる範囲内で他の構造等としてもよい。

【図面の簡単な説明】

【0047】

【図1】図1は、この発明に係るADU粒子製造装置を示す概略図である。

【図2】図2は、アンモニアガス噴出手段およびアンモニアガス吸引手段を拡大した斜視図である。

【図3】図3は、アンモニアガス噴出手段を示す概略図である。

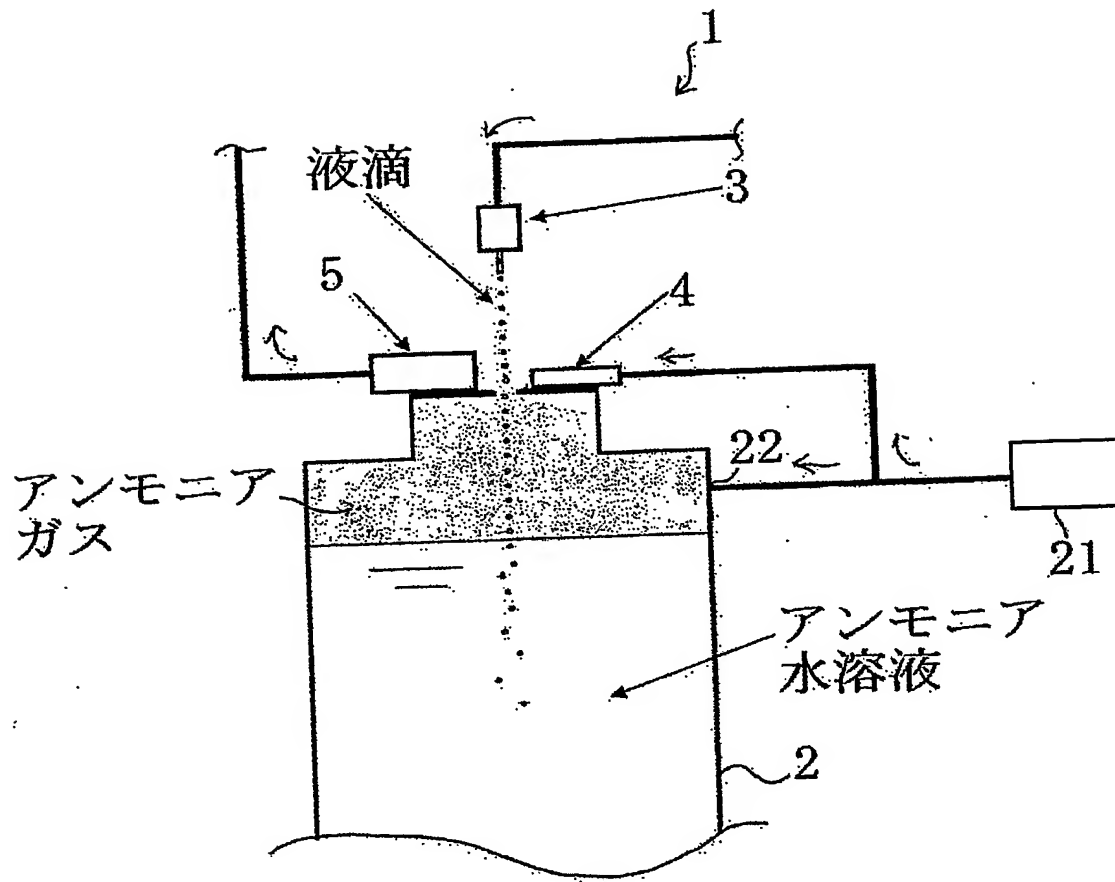
【図4】図4は、アンモニアガス噴出手段の変形例を示す概略図である。

【符号の説明】

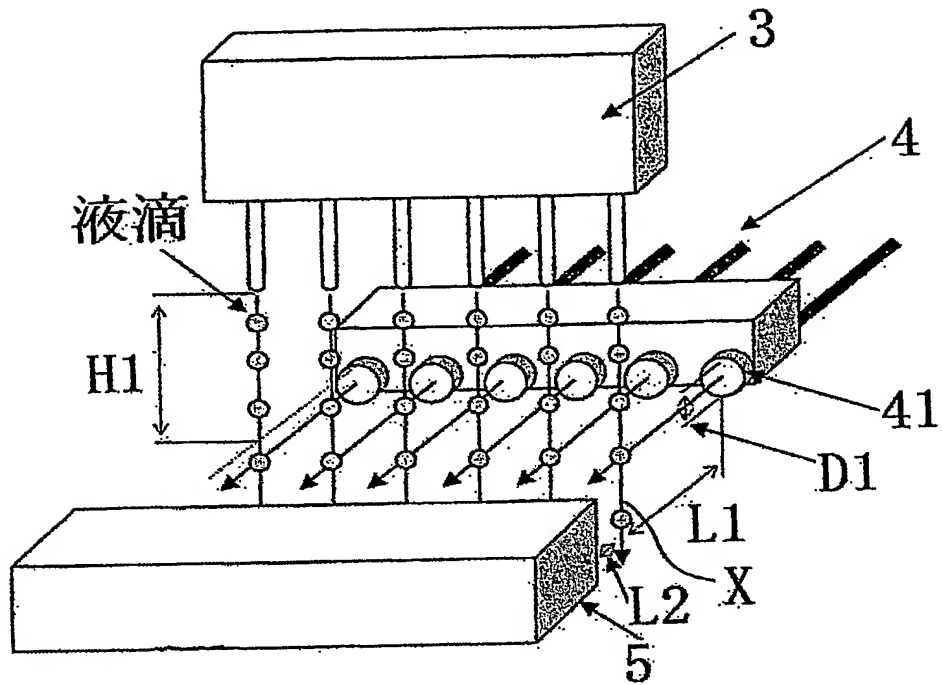
【0048】

- 1 ADU粒子製造装置
- 2 沈殿槽
- 3 滴下ノズル
- 4 アンモニアガス噴出手段
- 5 アンモニアガス吸引手段
- 21 アンモニアガス供給手段
- 22 アンモニアガス供給口
- 41 アンモニアガス噴出口
- 42 配管
- 44 バルブ
- 41A アンモニアガス噴出口
- X 滴下行路

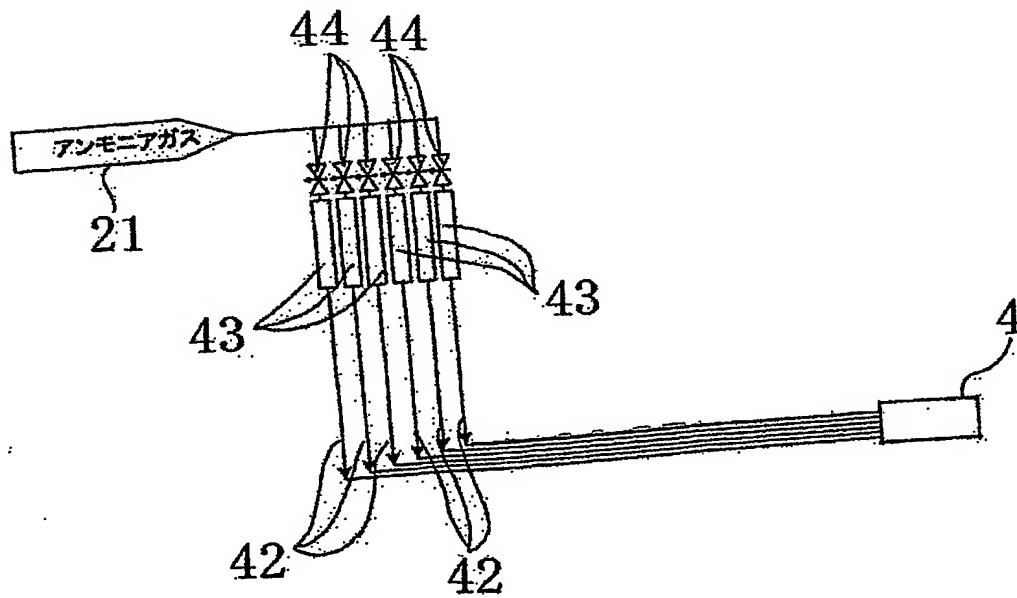
【書類名】 図面  
【図 1】



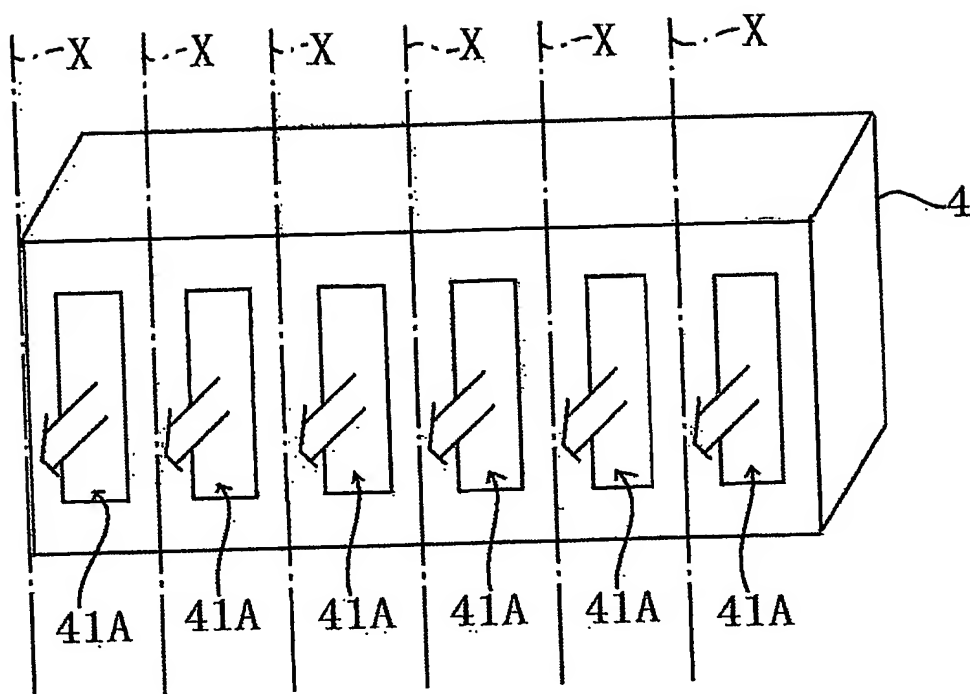
【図 2】



【図 3】



【図 4】



**【書類名】 要約書****【要約】**

**【課題】** 真球性の良い二酸化ウラン粒子を得ることができる重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置を提供すること。

**【解決手段】** アンモニア水溶液を貯留する沈殿槽と、前記沈殿槽に貯留されたアンモニア水溶液に、硝酸ウラニル含有原液を滴下する複数の滴下ノズルと、前記複数の滴下ノズルそれぞれから滴下される硝酸ウラニル含有原液の液滴が落下する落下行路それぞれに向けてアンモニアガスを噴出可能なアンモニアガス噴出手段とを備えて成ることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置である。

**【選択図】** 図 1



認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2004-030112
受付番号	50400195240
書類名	特許願
担当官	第一担当上席 0090
作成日	平成16年 2月 9日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成16年 2月 6日

特願 2004-030112

出願人履歴情報

識別番号

[000165697]

1. 変更年月日

2001年 8月20日

[変更理由]

住所変更

住所

東京都港区三田三丁目14番10号

氏名

原子燃料工業株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record.**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

### **IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**